

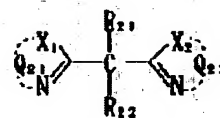
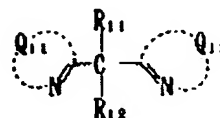
**ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT MATERIAL AND ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT USING THE SAME**

**Patent number:** JP2000008033  
**Publication date:** 2000-01-11  
**Inventor:** OKADA HISASHI  
**Applicant:** FUJI PHOTO FILM CO LTD  
**Classification:**  
- international: C09K11/06; H05B33/10; H05B33/14  
- european:  
**Application number:** JP19980171666 19980618  
**Priority number(s):**

**Also published as:** JP2000008033 (A)**Abstract of JP2000008033**

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To obtain a light emission element capable of emitting a light by converting an electric energy to a light, providing luminescence properties, suitable for a display element, a display, a backlight, electrophotography, a lighting source, an indicator, a signboard, etc., comprising a specific compound.

**SOLUTION:** This organic electroluminescent element material comprises a compound of formula I (R<sub>11</sub> is H or a substituent group; R<sub>12</sub> is H, a cation or a substituent group; Q<sub>11</sub> and Q<sub>12</sub> are each an atomic group necessary for forming a five-membered or six-membered ring and at least one of Q<sub>11</sub> and Q<sub>12</sub> is an atomic group for forming a six-membered ring) or formula II (R<sub>21</sub> is H or a substituent group; R<sub>22</sub> is H, a cation or a substituent group; X<sub>1</sub> and X<sub>2</sub> are each O, S, Se or the like; Q<sub>21</sub> and Q<sub>22</sub> are each an atomic group necessary for forming a five-membered ring) and is preferably usable in the field of an interior, etc.



---

Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-8033

(P2000-8033A)

(43) 公開日 平成12年1月11日(2000.1.11)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	キーワード(参考)
C 0 9 K 11/06	6 4 5	C 0 9 K 11/06	6 4 5
	6 4 0		6 4 0
	6 5 0		6 5 0
	6 5 5		6 5 5
	6 6 0		6 6 0

審査請求 未請求 請求項の数 9 O L (全 20 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平10-171666

(22) 出願日 平成10年6月18日(1998.6.18)

(71) 出願人 000005201

富士写真フイルム株式会社

神奈川県南足柄市中沼210番地

(72) 発明者 岡田 久

神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真

フイルム株式会社内

(74) 代理人 100073874

弁理士 萩野 平 (外4名)

Fターム(参考) 3K007 AB02 AB03 AB04 AB11 AB12

AB13 AB18 BB00 CA01 CA05

CB01 DA00 DA01 DB03 EB00

FA01

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子材料およびそれを使用した有機エレクトロルミネッセンス素子

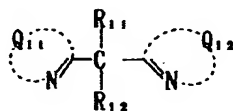
(57) 【要約】

【課題】 青色純度に優れた有機EL素子を提供する。

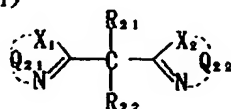
【解決手段】 下記一般式 (I) もしくは (II) で表される化合物又はこれらの化合物から形成される錯体であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【化1】

一般式 (I)



一般式 (II)



式中、 $R_{11}$ 、 $R_{21}$ は、水素原子または置換基を表す。 $R_{12}$ 、 $R_{22}$ は、水素原子、カチオンまたは置換基を表す。

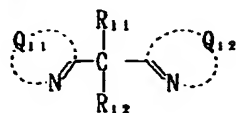
$Q_{11}$  および  $Q_{12}$  はそれぞれ5員または6員環を形成するに必要な原子群を表す。但し、 $Q_{11}$ 、 $Q_{12}$  のうち少なくとも一方は6員環を形成する原子群を表す。 $X_1$  および  $X_2$  はそれぞれ酸素原子、硫黄原子、セレン原子、 $CR_{x1}$  ( $R_{x2}$ )、 $NR_{x3}$  ( $R_{x1}$ 、 $R_{x2}$ 、 $R_{x3}$  はそれぞれ水素原子または置換基を表す。)を表す。 $Q_{21}$  および  $Q_{22}$  はそれぞれ5員環を形成するに必要な原子群を表す。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式(I)で表される化合物であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【化1】

一般式(I)

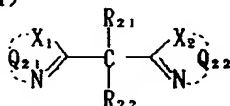


(式中、 $R_{11}$ は、水素原子または置換基を表す。 $R_{12}$ は、水素原子、カチオンまたは置換基を表す。 $Q_{11}$ および $Q_{12}$ はそれぞれ5員または6員環を形成するに必要な原子群を表す。但し、 $Q_{11}$ 、 $Q_{12}$ のうち少なくとも一方は6員環を形成する原子群を表す。)

【請求項2】 下記一般式(II)で表される化合物であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【化2】

一般式(II)



(式中、 $R_{21}$ は、水素原子または置換基を表す。 $R_{22}$ は、水素原子、カチオンまたは置換基を表す。 $X_1$ および $X_2$ はそれぞれ酸素原子、硫黄原子、セレン原子、 $CR_{x1}$  ( $R_{x2}$ )、 $NR_{x3}$  ( $R_{x1}$ 、 $R_{x2}$ 、 $R_{x3}$ はそれぞれ水素原子または置換基を表す。)を表す。 $Q_{21}$ および $Q_{22}$ はそれぞれ5員環を形成するに必要な原子群を表す。)

【請求項3】 請求項1における一般式(I)で表される化合物から形成される錯体であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【請求項4】 請求項2における一般式(II)で表される化合物から形成される錯体であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【請求項5】 請求項3、4における錯体が二価または三価の金属イオンを含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【請求項6】 請求項5における錯体の金属イオンが $Be^{2+}$ 、 $Mg^{2+}$ 、 $Al^{3+}$ 、 $Ga^{3+}$ 、 $Zn^{2+}$ 、 $Cu^{2+}$ 、 $Co^{2+}$ 、 $Ce^{3+}$ 、 $Eu^{3+}$ 、 $Eu^{2+}$ 、 $Tb^{3+}$ であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【請求項7】 一对の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄膜を形成した有機エレクトロルミネッセンス素子において、少なくとも一層が請求項1～6記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有する層であることを特徴とする有機エレクトロルミネ

ッセンス素子。

【請求項8】 一对の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄膜を形成した有機エレクトロルミネッセンス素子において、少なくとも一層が請求項1～6記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を塗布することにより成膜した層であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項9】 一对の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄膜を形成した有機エレクトロルミネッセンス素子において、少なくとも一層が請求項1～6記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料をポリマーに分散した層であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、電気エネルギーを光に変換して発光できる発光素子(有機エレクトロルミネッセンス(EL)素子)用材料および発光素子に関し、表示素子、ディスプレイ、バックライト、電子写真、照明光源、標識、看板、インテリア等の分野に好適に使用できる発光素子に関する。

【0002】

【従来の技術】 今日、種々の表示素子に関する研究開発が活発であり、中でも有機EL素子は、低電圧で高輝度の発光を得ることができるため、有望な表示素子として注目されている。例えば、有機化合物の蒸着により有機薄膜を形成するEL素子が知られている(アプライドフィジックス レターズ、51巻、913頁、1987年)。記載の有機EL素子は電子輸送材料と正孔輸送材料の積層構造を有し、従来の単層型素子に比べてその発光特性が大幅に向上している。

【0003】 上記積層型EL素子の発光効率を改良する手段として、蛍光色素をドーピングする方法が知られている。例えば、ジャーナルオブアプライドフィジックス 65巻、3610頁、1989年に記載のクマリン色素をドーピングした有機EL素子は、ドーピングしない素子に比べて発光効率が大幅に向上している。この場合、用いる蛍光性化合物の種類を変えることにより所望の波長の光を取り出すことが可能であるが、特に高効率で青色や赤色に発光し、かつ耐久性に優れた化合物は少ない。

【0004】 従来知られている青色発光材料としては、例えばアントラセン、ピレン、ペリレンなど縮合多環芳香族化合物(例えばJ. Chem. Phys., 44, 2902(1966)、Thin. Solid. Films, 99, 171(1982)等に記載)、テトラフェニルプタジエン系化合物(例えば特開昭59-194393号記載化合物)、ジスチリルベンゼン系化合物(例えば欧州特許第281381号、同319881号、同373582号、米国特許第4672265号、同4725531号、同4734338号、同4741

976号、同4776320号、特開昭61-37890号、特開平1-245087号、同2-247277号、同2-247278号、同2-209988号、同3-33184号、同3-84089号、同3-231970号、同4-117485号、同4-275268号、同5-17765号、同140145号等記載の化合物)、スチルベン系化合物(例えば特開平2-235983号、同3-47890号等記載の化合物)、ポリフェニル系化合物(例えば特開平3-33183号等記載の化合物)、芳香族3級アミン骨格を繰り返し単位として含有するポリカーボネート系化合物(例えば特開平5-247459号等記載の化合物)、トロポロン骨格を有する金属錯体(例えば特開平9-157642号等記載の化合物)、2-( $\alpha$ -ヒドロキシフェニル)-ベンゾキサゾール誘導体または2-( $\alpha$ -ヒドロキシフェニル)-ベンズチアゾール誘導体を配位子とする金属錯体(例えば特開平7-133483号、同8-113576号、同8-301877号、同8-306489号等記載の化合物)等が開示されているが、これら化合物は発光効率が低かったり、耐久性に問題があったり、色純度が悪かったりなどの問題があり、実用に供しえなかった。

【0005】また、従来の有機EL素子は、一般に発光スペクトルの幅が広く、このため青、緑、赤発光によるフルカラー画像の再現を行う上においては、スペクトルの重畳が起こり、色彩再現に問題があった。また、カラーフィルターを用いて青、緑、赤を得る上でも、利用されない光のスペクトル成分が存在するため、発光の利用効率が低下するなどの問題があった。このような問題を解決するものとして、例えばピロメテン-BF<sub>2</sub>錯体(例えば特開平9-208946号、同9-289081号など)やアセチルアセトナト誘導体-Eu<sup>3+</sup>錯体などの発光スペクトルの幅が狭い材料が開示されている。しかしながら前者の化合物を用いた場合には、緑～赤色の発光しかできず、また、後者は赤色発光のみ可能であり、両化合物群とも発光輝度が低いといった問題があった。更にこれらはドーパ材料としては機能するものの、電子輸送材料としてのホスト機能は殆どなく、煩雑かつ再現性の乏しい素子製造工程を要するため、電子輸送機能と発光機能を兼ねた材料の開発も望まれていた。

【0006】一方、有機EL素子において高輝度発光を実現しているものは有機物質を真空蒸着によって積層している素子であるが、製造工程の簡略化、加工性、大面積化等の観点から塗布方式による素子作製が望ましい。しかしながら、従来の塗布方式で作製した素子では発光輝度、発光効率の面で蒸着方式で作製した素子に劣っており、高輝度、高効率発光化が大きな課題となっていた。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】本発明の第一の目的

は、発光スペクトル幅が狭く、かつ色純度の高い有機EL素子用材料および有機EL素子の提供にある。第二の目的は低電圧駆動で高輝度、高効率の発光が可能で、繰り返し使用時での安定性に優れた有機EL素子用材料および有機EL素子の提供にある。

【0008】

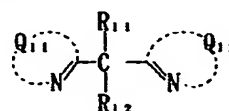
【課題を解決するための手段】この課題は下記手段によって達成された。

(1) 下記一般式(I)で表される化合物であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【0009】

【化3】

一般式(I)



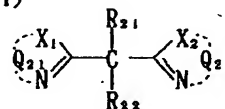
【0010】(式中、R<sub>11</sub>は、水素原子または置換基を表す。R<sub>12</sub>は、水素原子、カチオンまたは置換基を表す。Q<sub>11</sub>およびQ<sub>12</sub>はそれぞれ5員または6員環を形成するに必要な原子群を表す。但し、Q<sub>11</sub>、Q<sub>12</sub>のうち少なくとも一方は6員環を形成する原子群を表す。)

(2) 下記一般式(II)で表される化合物であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

【0011】

【化4】

一般式(II)



【0012】(式中、R<sub>21</sub>は、水素原子または置換基を表す。R<sub>22</sub>は、水素原子、カチオンまたは置換基を表す。X<sub>1</sub>およびX<sub>2</sub>はそれぞれ酸素原子、硫黄原子、セレン原子、CR<sub>x1</sub>(R<sub>x2</sub>)、NR<sub>x3</sub>(R<sub>x1</sub>、R<sub>x2</sub>、R<sub>x3</sub>はそれぞれ水素原子または置換基を表す。)を表す。Q<sub>21</sub>およびQ<sub>22</sub>はそれぞれ5員環を形成するに必要な原子群を表す。)

(3) (1)における一般式(I)で表される化合物から形成される錯体であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

(4) (2)における一般式(II)で表される化合物から形成される錯体であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

(5) (3)、(4)における錯体が二価または三価の金属イオンを含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

(6) (5)における錯体の金属イオンがBe<sup>2+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、Al<sup>3+</sup>、Ga<sup>3+</sup>、Zn<sup>2+</sup>、Cu<sup>2+</sup>、Co<sup>2+</sup>、C

$e^{3+}$ 、 $Eu^{3+}$ 、 $Eu^{2+}$ 、 $Tb^{3+}$ であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

(7) 一对の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄膜を形成した有機エレクトロルミネッセンス素子において、少なくとも一層が(1)～(6)記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有する層であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

(8) 一对の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄膜を形成した有機エレクトロルミネッセンス素子において、少なくとも一層が(1)～(6)記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を塗布することにより成膜した層であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

(9) 一对の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄膜を形成した有機エレクトロルミネッセンス素子において、少なくとも一層が(1)～(6)記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料をポリマーに分散した層であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

#### 【0013】

【発明の実施の形態】以下、本発明について詳細に説明する。まず、一般式(I)で表される化合物について説明する。 $R_{11}$ は、水素原子または置換基を表す。置換基としては、例えばアルキル基(好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～12、特に好ましくは炭素数1～8であり、例えばメチル、エチル、*iso*-プロピル、*tert*-ブチル、*n*-オクチル、*n*-デシル、*n*-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。)、アルケニル基(好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～12、特に好ましくは炭素数2～8であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。)、アルキニル基(好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～12、特に好ましくは炭素数2～8であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。)、アリール基(好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、特に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニル、*p*-メチルフェニル、ナフチルなどが挙げられる。)、アミノ基(好ましくは炭素数0～20、より好ましくは炭素数0～10、特に好ましくは炭素数0～6であり、例えばアミノ、メチルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジベンジルアミノなどが挙げられる。)、アルコキシ基(好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～12、特に好ましくは炭素数1～8であり、例えばメトキシ、エトキシ、ブトキシなどが挙げられる。)、アリールオキシ基(好ましくは炭素数6～20、より好ましくは炭素数6～16、特に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニルオキシ、2-ナフ

チルオキシなどが挙げられる。)、アシル基(好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～16、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばアセチル、ベンゾイル、ホルミル、ヒバロイルなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニル基(好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～16、特に好ましくは炭素数2～12であり、例えばメトキシカルボニル、エトキシカルボニルなどが挙げられる。)、アリールオキシカルボニル基(好ましくは炭素数7～20、より好ましくは炭素数7～16、特に好ましくは炭素数7～10であり、例えばフェニルオキシカルボニルなどが挙げられる。)、アシルオキシ基(好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～16、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばアセトキシ、ベンゾイルオキシなどが挙げられる。)、アシルアミノ基(好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～16、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばアセチルアミノ、ベンゾイルアミノなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニルアミノ基(好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～16、特に好ましくは炭素数2～12であり、例えばメトキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、アリールオキシカルボニルアミノ基(好ましくは炭素数7～20、より好ましくは炭素数7～16、特に好ましくは炭素数7～12であり、例えばフェニルオキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、スルホニルアミノ基(好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～16、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメタンスルホニルアミノ、ベンゼンスルホニルアミノなどが挙げられる。)、スルファモイル基(好ましくは炭素数0～20、より好ましくは炭素数0～16、特に好ましくは炭素数0～12であり、例えばスルファモイル、メチルスルファモイル、ジメチルスルファモイル、フェニルスルファモイルなどが挙げられる。)、カルバモイル基(好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～16、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばカルバモイル、メチルカルバモイル、ジエチルカルバモイル、フェニルカルバモイルなどが挙げられる。)、アルキルチオ基(好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～16、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメチルチオ、エチルチオなどが挙げられる。)、アリールチオ基(好ましくは炭素数6～20、より好ましくは炭素数6～16、特に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニルチオなどが挙げられる。)、スルホニル基(好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～16、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメル、トシルなどが挙げられる。)、スルフィニル基(好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～16、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメタンスルフィニル、ベンゼンスルフィニルなどが挙げ

られる。)、ウレイド基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばウレイド、メチルウレイド、フェニルウレイドなどが挙げられる。)、リン酸アミド基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばジエチルリン酸アミド、フェニルリン酸アミドなどが挙げられる。)、ヒドロキシ基、メルカプト基、ハロゲン原子(例えばフッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子)、シアノ基、スルホ基、カルボキシル基、ニトロ基、ヒドロキサム酸基、スルフィノ基、ヒドラジノ基、イミノ基、ヘテロ環基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子、具体的には例えばイミダゾリル、ピリジリル、フリル、ピペリジリル、モルホリノ、ベンズオキサゾリル、ベンズイミダゾリル、ベンズチアゾリルなどが挙げられる。)などが挙げられる。これらの置換基は更に置換されてもよい。また置換基が二つ以上ある場合は、同じでも異なってもよい。また、可能な場合には連結して環を連結してもよい。

【0014】置換基として好ましくは、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、スルフィニル基、ウレイド基、リン酸アミド基、ハロゲン原子、シアノ基、カルボキシル基、ニトロ基、ヘテロ環基であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アリール基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、シアノ基、芳香族ヘテロ環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、シアノ基である。

【0015】 $R_{11}$ として好ましくは、水素原子、アルキル基(より好ましくは炭素数1~20、更に好ましくは炭素数1~12、特に好ましくは炭素数1~6のアルキル基)、アリール基(より好ましくは炭素数6~30、更に好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12のアリール基)、シアノ基、芳香族ヘテロ環基(より好ましくは5員または6員環の芳香族ヘテロ環)である。

【0016】 $R_{12}$ は、水素原子、カチオンまたは置換基を表す。カチオンとしては有機カチオンまたは無機カチオンのいずれでもよく、例えばアルカリ金属イオン(例えば $Li^+$ 、 $Na^+$ 、 $K^+$ 、 $Cs^+$ など)、アルカリ土類金属イオン(例えば $Be^{2+}$ 、 $Mg^{2+}$ 、 $Ca^{2+}$ など)、アンモニウム(例えばアンモニウム、テトラエチルアンモニウムなど)、ホスホニウム(例えばテトラブチルホスホニウムなど)などが挙げられる。 $R_{12}$ で表される置換基としては、例えば $R_{11}$ の置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい置換基も同様である。 $R_{12}$ として好ましくは、水素原子、カチオン、アルキル基(より好ましくは炭素数1~20、更に好ましくは炭素数1~12、特に好ましくは炭素数1~6のアルキル基)、アリール基(より好ましくは炭素数6~30、更に好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12のアリール基)、シアノ基、芳香族ヘテロ環基(より好ましくは5員または6員環の芳香族ヘテロ環)であり、より好ましくは水素原子である。

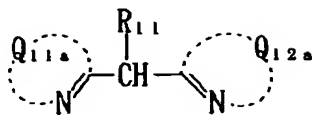
【0017】 $R_{11}$ 、 $R_{12}$ の組合せとして好ましくは、 $R_{11}$ 、 $R_{12}$ が共に水素原子の場合、 $R_{11}$ がアルキル基で $R_{12}$ が水素原子の場合、 $R_{11}$ がアリール基で $R_{12}$ が水素原子の場合、 $R_{11}$ がシアノ基で $R_{12}$ が水素原子の場合、 $R_{11}$ が芳香族ヘテロ環基で $R_{12}$ が水素原子の場合であり、更に好ましくは $R_{11}$ 、 $R_{12}$ が共に水素原子の場合、 $R_{11}$ がシアノ基で $R_{12}$ が水素原子の場合である。

【0018】 $Q_{11}$ および $Q_{12}$ はそれぞれ5員または6員環を形成するに必要な原子群を表す。但し、 $Q_{11}$ 、 $Q_{12}$ のうち少なくとも一方は6員環を形成する原子群を表す。これらの6員環はベンゼン環、ナフタレン環等が縮環していてもよい。 $Q_{11}$ 、 $Q_{12}$ で形成される5員または6員環としては、例えば、ピロール、イミダゾリン、イミダゾール、ベンズイミダゾール、ナフトイミダゾール、チアゾリン、チアゾール、ベンズチアゾール、ナフトチアゾール、イソチアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、ベンズオキサゾール、ナフトオキサゾール、イソオキサゾール、セレナゾリン、セレナゾール、ベンズセレナゾール、ナフトセレナゾール、インドール、イソインドール、インドレニン、ピラゾール、インダゾール、ピリジン、キノリン、イソキノリン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、プリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、アテリジン、カルボリン、フェナントリジン、アテリジン、フェナントロリン、ペリミジン、テトラザインデンなどが挙げられ、好ましくはピリジン、キノリン、イソキノリン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、プリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリンであり、より好ましくはピリジン、キノリンである。 $Q_{11}$ 、 $Q_{12}$ で形成される5員または6員環は置換基を有してもよく、置換基としては例えば $R_{11}$ の置換基として挙げたものが適用できる。一般式(I)で表される化合物のうち、好ましくは一般式(I-a)で表される化合物である。

【0019】

【化5】

## 一般式 (I-a)



【0020】式中、R<sub>11</sub>は一般式(I)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Q<sub>11a</sub>およびQ<sub>12a</sub>は、それぞれピリジン環またはキノリン環を形成する原子群を表す。Q<sub>11a</sub>、Q<sub>12a</sub>で形成されるピリジン環、キノリン環は置換基を有してもよく、置換基としては例えばR<sub>11</sub>の置換基として挙げたものが適用できる。)。

次に、一般式(II)で表される化合物について説明する。R<sub>21</sub>は、水素原子または置換基を表す。置換基としては、例えば一般式(I)におけるR<sub>11</sub>の置換基として挙げたものが適用できる。R<sub>21</sub>として好ましくは、水素原子、アルキル基(より好ましくは炭素数1~20、更に好ましくは炭素数1~12、特に好ましくは炭素数1~6のアルキル基)、アリール基(より好ましくは炭素数6~30、更に好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12のアリール基)、シアノ基、芳香族ヘテロ環基(より好ましくは5員または6員環の芳香族ヘテロ環)である。

【0021】R<sub>22</sub>は、水素原子、カチオンまたは置換基を表す。カチオンとしては有機カチオンまたは無機カチオンのいずれでもよく、例えばアルカリ金属イオン(例えばLi<sup>+</sup>、Na<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Cs<sup>+</sup>など)、アルカリ土類金属イオン(例えばBe<sup>2+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、Ca<sup>2+</sup>など)、アンモニウム(例えばアンモニウム、テトラエチルアンモニウムなど)、ホスホニウム(例えばテトラブチルホスホニウムなど)などが挙げられる。R<sub>22</sub>で表される置換基としては、例えば一般式(I)におけるR<sub>11</sub>の置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい置換基も同様である。R<sub>22</sub>として好ましくは、水素原子、カチオン、アルキル基(より好ましくは炭素数1~20、更に好ましくは炭素数1~12、特に好ましくは炭素数1~6のアルキル基)、アリール基(より好ましくは炭素数6~30、更に好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12のアリール基)、シアノ基、芳香族ヘテロ環基(より好ましくは5員または6員環の芳香族ヘテロ環)であり、より好ましくは水素原子である。

【0022】R<sub>21</sub>、R<sub>22</sub>の組合せとして好ましくは、R<sub>21</sub>、R<sub>22</sub>が共に水素原子の場合、R<sub>21</sub>がアルキル基でR<sub>22</sub>が水素原子の場合、R<sub>21</sub>がアリール基でR<sub>22</sub>が水素原子の場合、R<sub>21</sub>がシアノ基でR<sub>22</sub>が水素原子の場合、R<sub>21</sub>が芳香族ヘテロ環基でR<sub>22</sub>が水素原子の場合であり、更に好ましくはR<sub>21</sub>、R<sub>22</sub>が共に水素原子の場合、R<sub>21</sub>がシアノ基でR<sub>22</sub>が水素原子の場合である。

【0023】X<sub>1</sub>およびX<sub>2</sub>はそれぞれ酸素原子、硫黄原

子、セレン原子、CR<sub>x1</sub>(R<sub>x2</sub>)、NR<sub>x3</sub>(R<sub>x1</sub>、R<sub>x2</sub>、R<sub>x3</sub>はそれぞれ水素原子または置換基を表す。)を表す。)R<sub>x1</sub>、R<sub>x2</sub>、R<sub>x3</sub>で表される置換基としては例えば一般式(I)におけるR<sub>11</sub>の置換基として挙げたものが適用できる。R<sub>x1</sub>、R<sub>x2</sub>として好ましくは水素原子、アルキル基(より好ましくは炭素数1~20、更に好ましくは炭素数1~12、特に好ましくは炭素数1~6のアルキル基)、アリール基(より好ましくは炭素数6~30、更に好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12のアリール基)、芳香族ヘテロ環基(より好ましくは5員または6員環の芳香族ヘテロ環)であり、より好ましくは水素原子、アルキル基であり、さらに好ましくは炭素数1~6の低級アルキル基であり、特に好ましくはメチル、エチルである。R<sub>x3</sub>として好ましくは水素原子、アルキル基(より好ましくは炭素数1~20、更に好ましくは炭素数1~12、特に好ましくは炭素数1~6のアルキル基)、アリール基(より好ましくは炭素数6~30、更に好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12のアリール基)、芳香族ヘテロ環基(より好ましくは5員または6員環の芳香族ヘテロ環)であり、より好ましくは水素原子、アルキル基であり、更に好ましくは炭素数1~6の低級アルキル基であり、特に好ましくはメチル、エチルである。X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>として好ましくは酸素原子、硫黄原子、C R<sub>x1</sub>(R<sub>x2</sub>)、NR<sub>x3</sub>であり、より好ましくは酸素原子、硫黄原子、NR<sub>x3</sub>である。

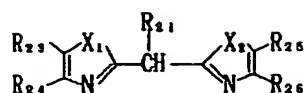
【0024】Q<sub>21</sub>およびQ<sub>22</sub>はそれぞれ5員環を形成するに必要な原子群を表す。これらの5員環にはベンゼン環、ナフタレン環等が縮環していてもよい。Q<sub>21</sub>、Q<sub>22</sub>で形成される5員環としては、単環または縮環のいずれでもよく、例えばイミダゾリン、イミダゾール、ベンズイミダゾール、ナフトイミダゾール、チアゾリン、チアゾール、ベンズチアゾール、ナフトチアゾール、イソチアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、ベンズオキサゾール、ナフトオキサゾール、イソオキサゾール、セレナゾリン、セレナゾール、ベンズセレナゾール、ナフトセレナゾール、インドール、インドレニン、ピラゾール、インダゾール、プリン、テトラザインデン、トリアゾール、テトラゾール、オキサジアゾール、チアジアゾールなどが挙げられ、好ましくはイミダゾール、ベンズイミダゾール、ナフトイミダゾール、チアゾール、ベンズチアゾール、ナフトチアゾール、オキサゾール、ベンズオキサゾール、ナフトオキサゾール、インドレニンであり、より好ましくはベンズイミダゾール、ナフトイミダゾール、ベンズチアゾール、ナフトチアゾール、ベンズオキサゾール、ナフトオキサゾール、インドレニンである。

【0025】一般式(II)で表される化合物のうち、好ましくは一般式(II-a)で表される化合物である。

【0026】

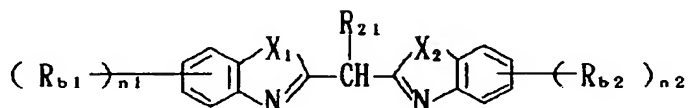
## 【化6】

一般式 (II-a)



【0027】(式中、 $R_{21}$ 、 $X_1$ 、 $X_2$ は、それぞれ一般式 (II) におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $R_{23}$ 、 $R_{24}$ 、 $R_{25}$ および $R_{26}$ は、それぞれ水素原子または置換基を表す。 $R_{23} \sim R_{26}$ で表される置換基としては、例えば一般式 (I) における $R_{11}$ の置換基として挙げたものが適用できる。 $R_{23}$ 、 $R_{24}$ 、 $R_{25}$ 、 $R_{26}$ として好ましくは水素原子、 $R_{23}$ と $R_{24}$ 、 $R_{25}$ と $R_{26}$ が連結して縮合環 (例えばベンゼン、ナフタレン、アントラセン、イミダゾリン、イミダゾール、ベンズイミダゾール、ナフトイミダゾール、チアゾリジン、チアゾール、ベンズチアゾール、ナフトチアゾール、イソチアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、ベンズオ

一般式 (II-b)



【0030】(式中、 $R_{21}$ 、 $X_1$ 、 $X_2$ は、それぞれ一般式 (II) におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $R_{b1}$ および $R_{b2}$ は、それぞれ置換基を表す。 $R_{b1}$ 、 $R_{b2}$ で表される置換基としては、例えば一般式 (I) における $R_{11}$ で表される置換基として挙げたものが適用でき、好ましい範囲も同様である。 $n_1$ および $n_2$ は、それぞれ0~4の整数を表し、 $n_1$ 、 $n_2$ が2以上の場合、 $R_{b1}$ 、 $R_{b2}$ は同一または互いに異なってもよく、また可能な場合には連結して環を形成してもよい。)

【0031】一般式 (I)、(II) で表される化合物は、低分子量化合物であってもよいし、一般式 (I)、

キサゾール、ナフトオキサゾール、イソオキサゾール、セレナゾール、ベンズセレナゾール、ナフトセレナゾール、ピリジン、キノリン、イソキノリン、インドール、イソインドール、インドレニン、ピラゾール、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、インダゾール、プリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、アテリジン、フェナントリジン、アテリジン、フェナントロリン、テトラザインデンなどを形成したものであり、より好ましくは水素原子、 $R_{23}$ と $R_{24}$ 、 $R_{25}$ と $R_{26}$ が連結して芳香族縮合環を形成したものであり、更に好ましくは、 $R_{23}$ と $R_{24}$ 、 $R_{25}$ と $R_{26}$ が連結してベンゼン環、ナフタレン環を形成したものである。)

【0028】一般式 (II) で表される化合物のうち、より好ましくは一般式 (II-b) で表される化合物である。

【0029】

【化7】

(II) で表される残基がポリマー主鎖に接続された高分子量化合物もしくは、一般式 (I)、(II) の骨格を主鎖にもつ高分子量化合物であってもよい。高分子量化合物の場合は、ホモポリマーであっても良いし、他のモノマーとの共重合体であっても良い。また、一般式 (I)、(II) は便宜的に極限構造式で表しているが、その互変異性体であってもよい。

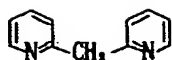
【0032】以下に本発明の一般式 (I)、(II) で表される化合物の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0033】

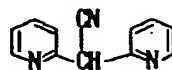
【化8】



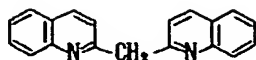
I-1



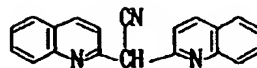
I-2



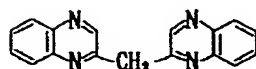
I-3



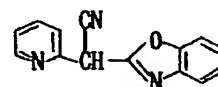
I-4



I-5



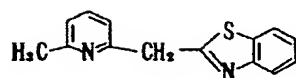
I-6



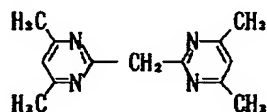
【0034】

【化9】

I-7



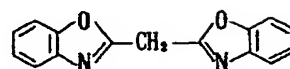
I-8



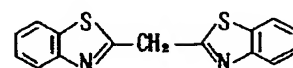
【0035】

【化10】

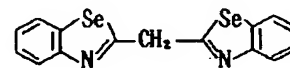
II-1



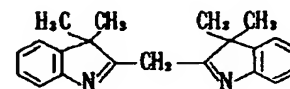
II-2



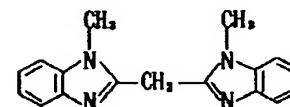
II-3



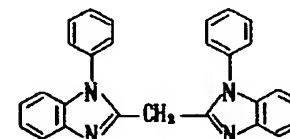
II-4



II-5



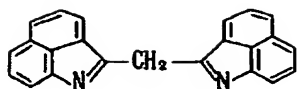
II-6



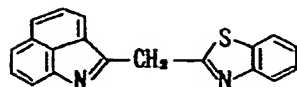
【0036】

【化11】

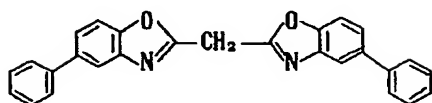
II-7



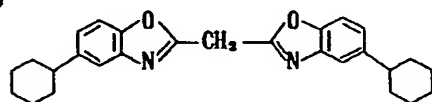
II-8



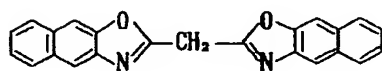
II-9



II-10

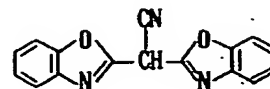


II-11

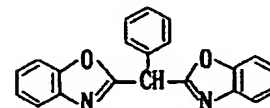


【0037】  
【化12】

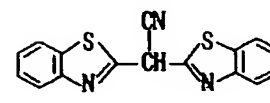
II-12



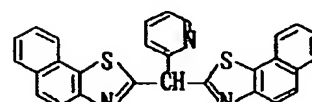
II-13



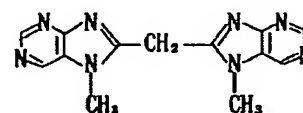
II-14



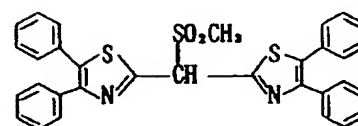
II-15



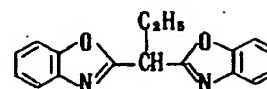
II-16



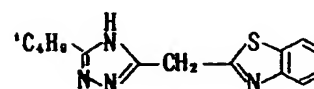
【0038】  
【化13】  
II-17



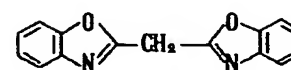
II-18



II-19



II-20



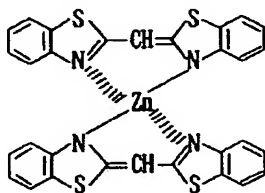
【0039】一般式(I)、(II)で表される化合物が

ら形成される錯体の金属イオンとしては2価または3価の陽イオンが好ましく、より好ましくは $\text{Be}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Al}^{3+}$ 、 $\text{Ga}^{3+}$ 、 $\text{Zn}^{2+}$ 、 $\text{Cu}^{2+}$ 、 $\text{Co}^{2+}$ 、 $\text{Ce}^{3+}$ 、 $\text{Eu}^{3+}$ 、 $\text{Eu}^{2+}$ 、 $\text{Tb}^{3+}$ であり、更に好ましくは $\text{Al}^{3+}$ 、 $\text{Zn}^{2+}$ であり、特に好ましくは $\text{Zn}^{2+}$ である。以下に本発明の一般式(I)、(II)で表される化合物を配位子とする錯体の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

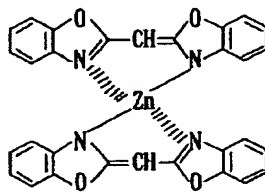
【0040】

【化14】

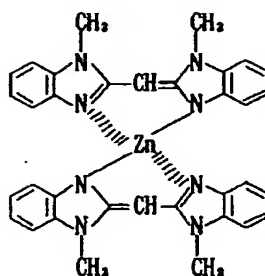
K-1



K-2



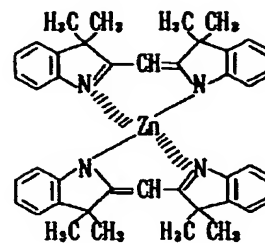
K-3



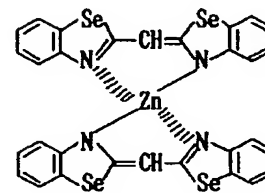
【0041】

【化15】

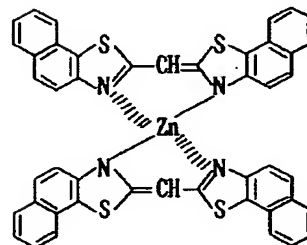
K-4



K-5



K-6



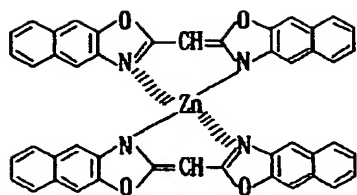
【0042】

【化16】

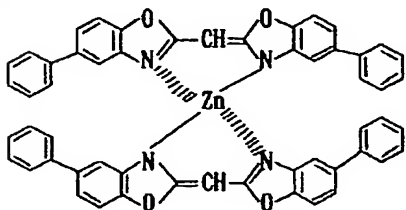
K-7

【0043】

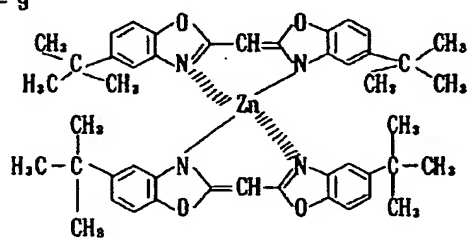
【化17】



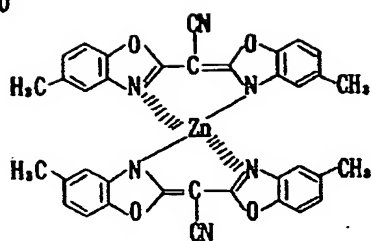
K-8



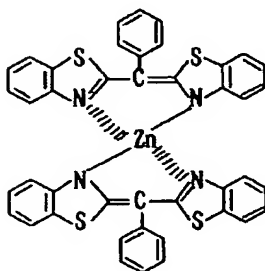
K-9



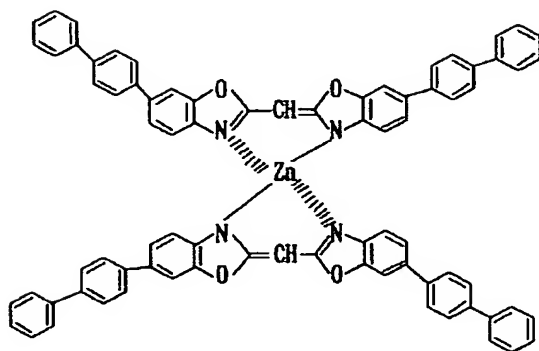
K-10



K-11



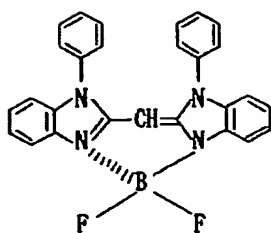
K-12



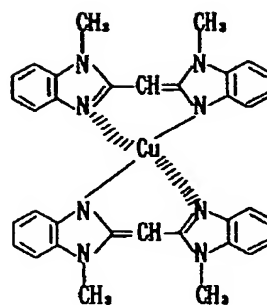
【0044】

【化18】

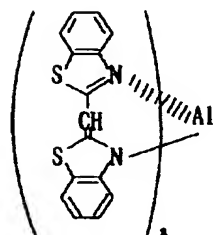
K-13



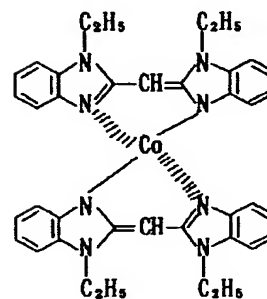
K-16



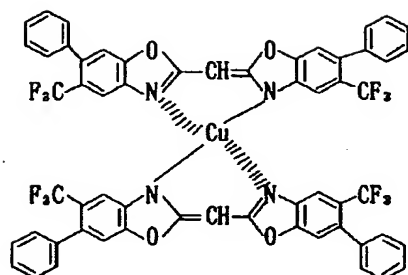
K-14



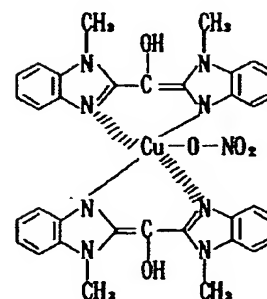
K-17



K-15



K-18



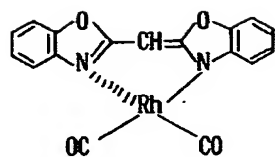
【0045】

【化19】

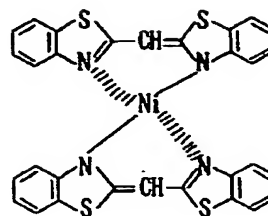
【0046】

【化20】

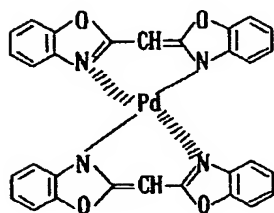
K-19



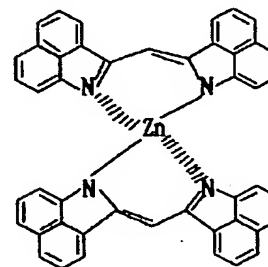
K-22



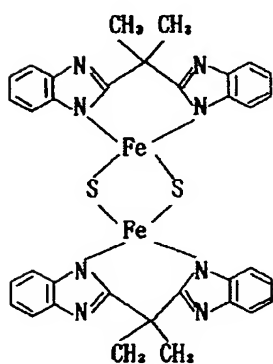
K-20



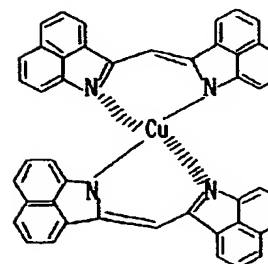
K-23



K-21



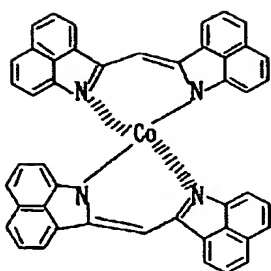
K-24



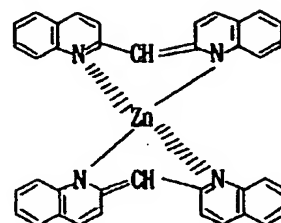
【0047】  
【化21】

【0048】  
【化22】

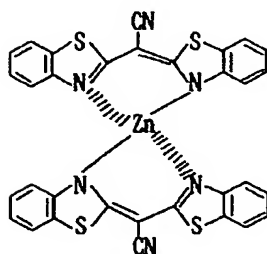
K-25



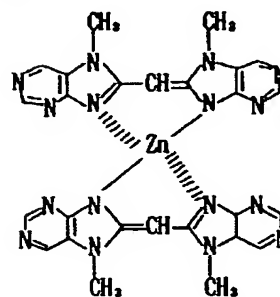
K-28



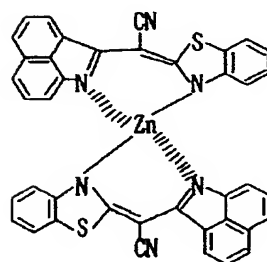
K-26



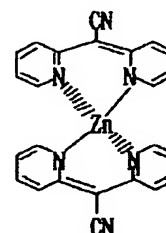
K-29



K-27



K-30

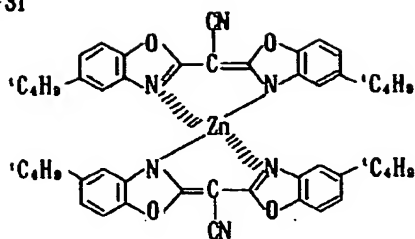


【0049】  
【化23】

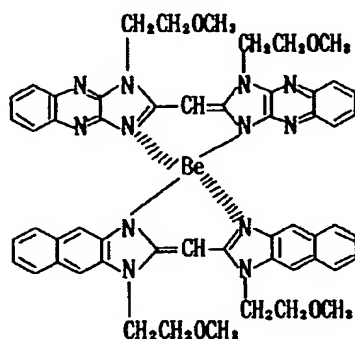
【0050】  
【化24】



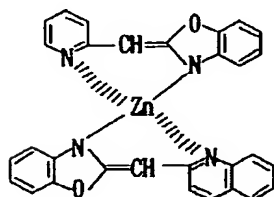
K-31



K-32



K-33



【0051】本発明の一般式(I)、(II)および一般式(I)、(II)で表される化合物から形成される錯体は種々の方法で合成することができ、例えば、Journal of Organic Chemistry, vol 54, 786 (1988年)、同、vol 63, 436 (1998年)、Inorganic Chemistry, vol 35, 3 (1996年)、Journal of Organometallic Chemistry, vol 489, 107 (1995年)、Journal of Physics, vol 99, 6421 (1993年)、Journal of the Chemical Society, Dalton Transactions, 16, 2457 (1992年)、Inorganica Chimica Acta, vol 174, 169 (1990年)、Transition Metal Chemistry, vol 113, 423 (1988年)、Journal of the Chemical Society, Chemical Communication, 490 (1986年)、Analytica Chimica Acta, vol 44, 115 (1969年)などに記載

された合成法が適用できる。また、本発明の金属錯体は、一般式(I)、(II)で表される化合物と各種金属または金属塩から合成できる。金属塩としては、特に限定はないが硝酸塩、塩酸塩などのハロゲン塩、硫酸塩、酢酸塩などのカルボン酸塩、ホスホン酸塩、スルホン酸塩、水酸化物、アルコキシドなどが好適に用いられ、好ましくは硝酸塩、塩酸塩、硫酸塩、酢酸塩である。金属錯体を合成する際に用いる一般式(I)、(II)で表される化合物と金属塩のモル比は合成する錯体に応じて適宜選択するが、通常金属イオンに対して一般式(I)、

(II)で表される化合物を0.1~10倍モル、好ましくは0.5~8倍モル、更に好ましくは0.5~6倍モルである。また、錯体の合成に際しては塩基を用いることができる。塩基としては、種々の無機または有機塩基を用いることができ、例えば金属水酸化物(例えば水酸化ナトリウム、水酸化カリウムなど)、金属炭酸塩(例えば炭酸ナトリウム、炭酸カリウムなど)、金属炭酸水素塩(例えば炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウムなど)、有機塩基(例えばトリエチルアミン、ナトリウムアルコキシドなど)の使用が好ましい。使用する塩基の量は、特に限定しないが、好ましくは一般式(I)、

(II)で表される化合物に対して0.01当量~3.0当量、より好ましくは1当量~10当量である。金属錯体の合成に際しては溶媒を用いてもよく、溶媒としては特に限定はないが水、アルコール類(例えばメタノール、エタノール、2-プロパノールなど)、エステル類(例えば酢酸エチルなど)、エーテル類(例えばジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサンなど)、アミド類(例えばジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミドなど)、ニトリル類(例えばアセトニトリルなど)、ケトン類(例えばアセトン、シクロヘキサノンなど)、炭化水素類(例えばヘキサン、ベンゼン、トルエンなど)、ハロゲン化炭化水素類(例えばジクロロメタン、クロロホルム、1,2-ジクロロエタンなど)、カルボン酸類(例えば酢酸など)などを用いることができる。また、これら溶媒を混合して用いてもよい。溶媒として好ましくはアルコール類、エーテル類、ケトン類であり、より好ましくはアルコール類であり、特に好ましくはメタノール、エタノール、2-プロパノールである。金属錯体を合成する際の反応温度は特に限定はないが、好ましくは10~150℃、好ましくは10~100℃、より好ましくは10~80℃である。

【0052】以下に本発明の化合物の合成法について具体例をもって説明する。

#### 合成例1. 例示化合物II-2の合成

2-アミノチオフェノール25.0g(0.20mol)とマロン酸ジエチル17.2g(0.10mol)を混合し、窒素雰囲気下200℃にて3時間加熱攪拌した。室温まで冷却した後、酢酸エチル/飽和食塩水にて洗浄し、有機層を無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶

媒を減圧留去した後、酢酸エチル／*n*-ヘキサンにて再結晶することにより、化合物II-2を21.0g (0.0745mol) 得た。収率75%

【0053】合成例2. 例示化合物K-1の合成

例示化合物II-2 1.41g (4.99mmol) をメタノール30mlに溶解し、室温下攪拌しているところへ、ナトリウムメトキシドの28%メタノール溶液1.1ml (5.36mmol) を加えた後、酢酸亜鉛2水和物 0.55g (2.51mmol) /メタノール7ml溶液を滴下した。室温下1時間攪拌した後、析出した固体を濾取し、クロロホルム/メタノールにて再結晶することにより、黄色固体の例示化合物K-1を1.12g (1.78mmol) 得た。収率71%

【0054】本発明の発光素子は陽極、陰極の一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄膜を形成した素子であり、発光層のほか正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層、保護層などを有してもよく、またこれらの各層はそれぞれ他の機能を備えたものであってもよい。各層の形成にはそれぞれ種々の材料を用いることができる。

【0055】陽極は正孔注入層、正孔輸送層、発光層などに正孔を供給するものであり、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物などを用いることができ、好ましくは仕事関数が4eV以上の材料である。具体例としては酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化インジウムスズ (ITO) 等の導電性金属酸化物、あるいは金、銀、クロム、ニッケル等の金属、さらにこれらの金属と導電性金属酸化物との混合物または積層物、ヨウ化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロールなどの有機導電性材料、およびこれらとITOとの積層物などが挙げられ、好ましくは、導電性金属酸化物であり、特に、生産性、高導電性、透明性等の点からITOが好ましい。陽極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10nm～5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50nm～1μmであり、更に好ましくは100nm～500nmである。

【0056】陽極は通常、ソーダライムガラス、無アルカリガラス、透明樹脂基板などの上に層形成したものが用いられる。ガラスを用いる場合、その材質については、ガラスからの溶出イオンを少なくするため、無アルカリガラスを用いることが好ましい。また、ソーダライムガラスを用いる場合、シリカなどのバリアコートを施したものを使用することが好ましい。基板の厚みは、機械的強度を保つのに十分であれば特に制限はないが、ガラスを用いる場合には、通常0.2mm以上、好ましくは0.7mm以上のものを用いる。陽極の作製には材料によって種々の方法が用いられるが、例えばITOの場合、電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、化学反応法 (ゾルゲル法など)、酸化インジウム

スズの分散物の塗布などの方法で膜形成される。陽極は洗浄その他の処理により、素子の駆動電圧を下げたり、発光効率を高めることも可能である。例えばITOの場合、UV-オゾン処理などが効果的である。

【0057】陰極は電子注入層、電子輸送層、発光層などに電子を供給するものであり、電子注入層、電子輸送層、発光層などの負極と隣接する層との密着性やイオン化ポテンシャル、安定性等を考慮して選ばれる。陰極の材料としては金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物を用いることができ、具体例としてはアルカリ金属 (例えばLi、Na、K等) またはそのフッ化物、アルカリ土類金属 (例えばMg、Ca等) またはそのフッ化物、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム-カリウム合金またはそれらの混合金属、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属、インジウム、イッテリビウム等の希土類金属等が挙げられ、好ましくは仕事関数が4eV以下の材料であり、より好ましくはアルミニウム、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属等である。陰極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10nm～5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50nm～1μmであり、更に好ましくは100nm～1μmである。陰極の作製には電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、コーティング法などの方法が用いられ、金属を単体で蒸着することも、二成分以上を同時に蒸着することもできる。さらに、複数の金属を同時に蒸着して合金電極を形成することも可能であり、またあらかじめ調整した合金を蒸着させてもよい。陽極及び陰極のシート抵抗は低い方が好ましく、数百Ω/□以下が好ましい。

【0058】発光層の材料は、電界印加時に陽極または正孔注入層、正孔輸送層から正孔を注入することができると共に陰極または電子注入層、電子輸送層から電子を注入することができる機能や、注入された電荷を移動させる機能、正孔と電子の再結合の場を提供して発光させる機能を有する層を形成することができるものであれば何でもよい。好ましくは発光層に本発明の化合物を含有するものであるが、本発明の化合物の他の発光材料を用いることもできる。例えばベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、スチリルベンゼン誘導体、ポリフェニル誘導体、ジフェニルブタジエン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ナフタルイミド誘導体、クマリン誘導体、ペリレン誘導体、ペリノン誘導体、オキサジアゾール誘導体、アルダジン誘導体、ピラリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ビススチリルアントラセン誘導体、キナクリドン誘導体、ピロロピリジン誘導体、チアジアゾロピリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、スチリルアミン誘導体、芳香族ジメチリデン化合物、8-キノリノ

ール誘導体の金属錯体や希土類錯体に代表される各種金属錯体等、ポリチオフェン、ポリフェニレン、ポリフェニレンビニレン等のポリマー化合物等が挙げられる。発光層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm～1 μmであり、更に好ましくは10 nm～500 nmである。発光層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）、LB法などの方法が用いられ、好ましくは抵抗加熱蒸着、コーティング法である。

【0059】正孔注入層、正孔輸送層の材料は、陽極から正孔を注入する機能、正孔を輸送する機能、陰極から注入された電子を障壁する機能のいずれかを有しているものであればよい。その具体例としては、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリーールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラズロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリーールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン系化合物、ホルフィリン系化合物、ポリシラン系化合物、ポリ（N-ビニルカルバゾール）誘導体、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー等が挙げられる。正孔注入層、正孔輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm～1 μmであり、更に好ましくは10 nm～500 nmである。正孔注入層、正孔輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。正孔注入層、正孔輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記正孔注入輸送剤を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）が用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、ポリ（N-ビニルカルバゾール）、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂などが挙げられる。

【0060】電子注入層、電子輸送層の材料は、陰極か

ら電子を注入する機能、電子を輸送する機能、陽極から注入された正孔を障壁する機能のいずれかを有しているものであればよい。その具体例としては、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、フルオレノン誘導体、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体等が挙げられる。電子注入層、電子輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm～1 μmであり、更に好ましくは10 nm～500 nmである。電子注入層、電子輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。電子注入層、電子輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記電子注入輸送剤を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）などが用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、正孔注入輸送層の場合に例示したものが適用できる。

【0061】保護層の材料としては水分や酸素等の素子劣化を促進するものが素子内に入ることを抑止する機能を有しているものであればよい。その具体例としては、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Ni等の金属、MgO、SiO、SiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、GeO、NiO、CaO、BaO、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、TiO<sub>2</sub>等の金属酸化物、MgF<sub>2</sub>、LiF、AlF<sub>3</sub>、CaF<sub>2</sub>等の金属フッ化物、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリウレア、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレンとジクロロジフルオロエチレンとの共重合体、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種のモノマーとを含むモノマー混合物を共重合させて得られる共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質、吸水率0.1%以下の防湿性物質等が挙げられる。保護層の形成方法についても特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、MBE（分子線エピタキシー）法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法（高周波励起イオンプレーティング法）、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、ガスソースCVD法、コーティング法を適用できる。

## 【0062】

【実施例】以下に実施例を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれにより限定されるものではない。

## 実施例1

ITO付きガラス基板をエッチング、洗浄後、銅フタロシアニンを膜厚5nm、N,N-ジフェニル-N,N-( $\alpha$ -ナフチル)-1,1-ビスフェニル-4,4-ジアミンを35nm、表1記載の化合物を50nm、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(III)を10nmになるようにこの順に真空蒸着( $8 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-5}$  Torr)した。この上に5mm $\times$ 5mmにパターンニ

ングしたマスクを設置し、マグネシウム：銀=10：1を250nm共蒸着した後、銀300nmを蒸着した( $8 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-5}$  Torr)。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、ITOを陽極、Mg：Agを陰極として直流定電圧をEL素子に印加し発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM-8、発光波長、色度座標を浜松フォトニクス社製スペクトルアナライザーPMA-11を用いて測定した。結果を表1に示す。

【0063】

【表1】

表1

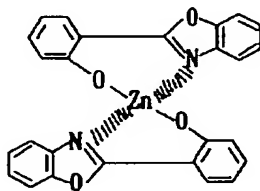
試料 No.	化合物	発光波長* $\lambda_{max}(nm)$	色度座標* (x, y)	最高輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	備考
1-1	比較化合物a	480	0.17, 0.19	320	比較例
1-2	比較化合物b	534	0.24, 0.65	1280	"
1-3	例示化合物K-1	445	0.16, 0.13	1850	本発明
1-4	例示化合物K-2	410	0.15, 0.11	1320	"
1-5	例示化合物K-3	440	0.16, 0.12	1480	"
1-6	例示化合物K-30	470	0.17, 0.15	1920	"

\*200cd/m<sup>2</sup>のときの

【0064】

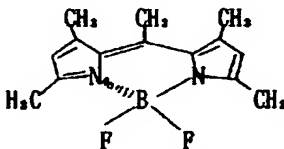
【化25】

比較化合物a



特開平7-133483号等記載の化合物

比較化合物b



特開平9-289081号等記載の化合物

【0065】表1の結果より、本発明の化合物を用いた素子では高輝度かつ色純度の高い青色発光が得られた。

## 【0066】実施例2

ポリ(N-ビニルカルバゾール)40mg、表2記載の化合物1mg、PBD(p-tert-ブチルフェニルビフェ

ニルオキサジアゾール)12mg、を1,2-ジクロロエタン3mlに溶解し、洗浄したITO基板上にスピコートした。この時の膜厚は約120nmであった。次いで5mm $\times$ 5mmにパターンニングしたマスクを設置し、蒸着装置内でマグネシウム：銀=10：1を250

nm共蒸着した後、銀300nmを蒸着した( $8 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-5}$  Torr)。この素子を実施例1と同様な方法で評価した。結果を表2に示す。

【0067】  
【表2】

表2

試料 No.	化 合 物	発光波長* $\lambda_{\max}(\text{nm})$	色度座標* (x, y)	最高輝度 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )	備考
2-1	比較化合物a	480	0.17, 0.19	280	比較例
2-2	比較化合物b	535	0.24, 0.65	430	"
2-3	例示化合物K-1	446	0.16, 0.14	1380	本発明
2-4	例示化合物K-2	414	0.16, 0.12	1100	"
2-5	例示化合物K-3	441	0.16, 0.13	1150	"
2-6	例示化合物K-30	472	0.17, 0.16	1520	"

\*200cd/ $\text{m}^2$ のときの値

比較化合物a、bは実施例1と同じ

【0068】以上の結果より、本発明の化合物を用いた素子では通常発光輝度が低いとされる塗布方式でも良好な発光特性(発光輝度、色相)が得られ、特に青色純度の点で優れた素子が得られた。

【発明の効果】本発明により、青色純度に優れた有機EL素子が得られる。特に通常輝度の低い塗布方式でも良好な発光特性が得られ、製造コスト面等で有利な素子作製が可能である。

【0069】

#### 【手続補正書】

【提出日】平成10年8月6日(1998.8.6)

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0062

【補正方法】変更

【補正内容】

【0062】

【実施例】以下に実施例を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれにより限定されるものではない。

#### 実施例1

ITO付きガラス基板をエッチング、洗浄後、銅フタロシアニン(膜厚5nm、N,N'-ジフェニル-N,N'-ジ(1-ナフチル)-1,1'-ビフェニル-

4,4'-ジアミンを35nm、表1記載の化合物を50nm、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(III)を10nmになるようにこの順に真空蒸着( $8 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-5}$  Torr)した。この上に5mm×5mmにパターニングしたマスクを設置し、マグネシウム:銀=10:1を250nm共蒸着した後、銀300nmを蒸着した( $8 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-5}$  Torr)。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、ITOを陽極、Mg:Agを陰極として直流定電圧をEL素子に印加し発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM-8、発光波長、色度座標を浜松フォトニクス社製スペクトルアナライザーPMA-11を用いて測定した。結果を表1に示す。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.<sup>7</sup>

H05B 33/10

33/14

識別記号

F I

H05B 33/10

33/14

テームド(参考)

B